

88P 3781
52
(19) BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

(12) **Patentschrift**
(11) **DE 2411006 C2**

(51) Int. Cl. 3:
C01B 5/00
B 01 J 12/00

(21) Aktenzeichen: P 24 11 006.3-41
(22) Anmeldetag: 7. 3. 74
(43) Offenlegungstag: 19. 9. 74
(45) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: 20. 6. 85

D 2

Innerhalb von 3 Monaten nach Veröffentlichung der Erteilung kann Einspruch erhoben werden

(30) Unionspriorität: (32) (33) (31)

12.03.73 US 340148

(73) Patentinhaber:

Rockwell International Corp., El Segundo, Calif., US

(74) Vertreter:

Wächtershäuser, G., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.,
Pat.-Anw., 8000 München

(72) Erfinder:

Henrie, James O., Hidden Hills, Calif., US

(56) Im Prüfungsverfahren entgegengehaltene
Druckschriften nach § 44 PatG:

DE-PS 8 20 134
DE-AS 11 15 719
GB 11 17 446

In Betracht gezogene ältere Anmeldung:
DE-OS 23 00 499 Holleman-Wiberg, 57, Aufl. 60,
S. 228;

(54) Vorrichtung zur Gasphasenumsetzung von Wasserstoff und Sauerstoff

DE 2411006 C2

DE 2411006 C2

Patentansprüche:

1. Vorrichtung zur thermischen Rekombination von Gasen in einer exothermen Reaktion mit einer Einrichtung zur Vorerhitzung der umzusetzenden Reaktionspartner und mit einer zylindrischen Reaktionskammer mit einem Gasauslaß und mit einem Gaseinlaß, der in ein Venturirohr mündet, dessen Ansaugeinlaß mit einem bereits umgesetztes Gas führenden Bereich der Reaktionskammer in Verbindung steht, gekennzeichnet durch einen ko-axial innerhalb der Reaktionskammer (6) und mit Abstand von der Reaktionskammerwandung angeordneten becherförmigen Mantel (34), in dessen Innenraum der Gaseinlaß für ein Wasserstoff und Sauerstoff enthaltendes Gasgemisch mündet, wobei der Gasauslaß (12) mit dem durch den becherförmigen Mantel (34) und die Reaktionskammerwandung definierten Zwischenraum (56) in Verbindung steht, und durch eine Temperaturregeleinrichtung (13 bis 19), welche auf die Temperatur in der Reaktionskammer (6) anspricht und die Einrichtung (4) zur Vorerhitzung derart steuert, daß die Gastemperatur in der Reaktionskammer (6) im wesentlichen auf einem vorbestimmten Wert gehalten wird.

2. Vorrichtung nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch eine Temperaturregeleinrichtung (13-19), welche die Vorheizung der umzusetzenden Reaktionspartner derart steuert, daß die Temperatur in der Reaktionskammer (6) auf einem vorbestimmten Wert gehalten wird.

3. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der Gaseinlaß (26) im wesentlichen axial in das offene Ende des becherförmigen Mantels (34) führt.

4. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß mindestens ein Gas-einleitungsrohr (62) im wesentlichen tangential in den becherförmigen Mantel (34) in der Nähe des Bodens (38) desselben mündet.

Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung zur Gasphasenumsetzung gemäß dem Oberbegriff des Hauptanspruchs. Eine solche Vorrichtung ist bekannt aus der britischen Patentschrift 11 17 446. Diese bekannte Vorrichtung eignet sich jedoch nicht zur Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff.

Bei verschiedenen industriellen Verfahren, z. B. bei der Stromerzeugung, treten aufgrund von Metall-Wasser-Reaktionen oder aufgrund einer radiolytischen Zersetzung des Wassers oder durch Elektrolyse oder auf andere Weise Gase mit einem Gehalt an Wasserstoff und Sauerstoff auf. Solche Gase rufen eine erhebliche Explosionsgefahr hervor. Häufig können sie aufgrund eines Gehaltes an radioaktiven Stoffen oder anderen Verunreinigungen nicht an die Atmosphäre entlassen werden. Man hat daher verschiedene Verfahren zur Rekombination des Wasserstoffs und Sauerstoffs in solchen Gasgemischen entwickelt. Gemäß der DE-PS 8 20 134 soll die Rekombination mit Hilfe eines Palladiumkatalysators erfolgen. Dieser wird jedoch leicht vergiftet, so daß dieses Verfahren nicht sehr zuverlässig arbeitet. Gemäß der DE-OS 23 00 499 wird eine thermische Rekombination durchgeführt. Dabei sind jedoch

äußerst aufwendige und komplizierte Apparaturen und Steuereinrichtungen erforderlich, welche mit einem erheblichen Wartungsaufwand verbunden sind. Bei einer thermischen Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff muß das zu behandelnde Gasgemisch in einer Heizkammer auf eine Temperatur von etwa 650°C erhitzt werden. Danach kommt es zu einer spontanen Rekombination. Diese Rekombinationsreaktion ist jedoch äußerst exotherm. Es kommt zu einer Temperatursteigerung um etwa 60°C pro 1% Wasserstoff im Gas. Daher führen selbst geringe Wasserstoffgehalte von z. B. 3% zu erheblichen Temperatursteigerungen in der Reaktionskammer auf etwa 870°C oder darüber. Diese Temperatur übersteigt die Toleranzgrenze herkömmlicher Materialien für den Bau der Rekombinationsvorrichtungen. Bei einem Gehalt an 5% Wasserstoff in der Luft erhöht sich die Temperatur von etwa 650°C auf etwa 1050°C. Es sind zwar einige exotische Materialien entwickelt worden, welche derartigen Temperaturen standhalten können. Diese sind jedoch äußerst teuer und schwer verarbeitbar.

Es ist somit Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Vorrichtung zur thermischen Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff, insbesondere bei einem Wasserstoffgehalt von mehr als 3%, zu schaffen, welche aus herkömmlichen Materialien gefertigt ist und es gestattet, die Wandtemperatur unterhalb 820°C zu halten.

Diese Aufgabe wird erfundungsgemäß durch die Merkmale des Hauptanspruchs gelöst.

In dem zu behandelnden Gas kann die Wasserstoffkonzentration wesentlich über 3% liegen, und dennoch können die Wandtemperaturen wesentlich unterhalb 820°C gehalten werden. Eine Außenkühlung ist nicht erforderlich.

Im folgenden wird die Erfindung anhand von Zeichnungen näher erläutert. Es zeigt

Fig. 1 eine schematische Darstellung der erfundungsgemäßen Vorrichtung;

Fig. 2 einen Längsschnitt durch eine erste Ausführungsform einer Reaktionskammer der erfundungsgemäßen Vorrichtung;

Fig. 3 einen Querschnitt durch eine zweite Ausführungsform einer Reaktionskammer;

Fig. 4 einen Längsschnitt durch die Reaktionskammer gemäß Fig. 3;

Fig. 5 einen Längsschnitt durch eine dritte Ausführungsform einer Reaktionskammer.

Fig. 1 zeigt in schematischer Darstellung eine thermische Rekombinationseinrichtung, welche im wesentlichen aus einer Heizkammer 4 und einer Reaktionskammer 6 besteht. Ein Gebläse 8 oder eine äquivalente Einrichtung überführt Verfahrensabgase über eine Rohrleitung 10 in die Heizkammer 4 und danach in die Reaktionskammer 6 und sodann durch einen Auslaß 12 hinaus. Der Auslaß 12 führt entweder zu einem Abgaskamin oder zu einem Kreislaufsystem oder zu einer anderen Abgasvorrichtung, welche nicht dargestellt ist. Das Gebläse 8 und die Heizkammer 4 können herkömmlicher Natur sein. Die Reaktionskammer 6 ist jedoch besonders ausgebildet, so daß die erhitzten Gase von der Heizkammer eingeführt werden können und andererseits die Gase dort während einer vorbestimmten Zeitdauer zurückgehalten werden, welche ausreicht, damit die thermische Rekombinationsreaktion stattfinden kann. Ferner ist die Reaktionskammer 6 derart ausgebildet, daß zuvor umgesetzte Gase mit den von der Heizkammer 4 kommenden neu eingeführten Gasen vermischt werden. Hierdurch wird eine Temperaturerhö-

hung bewirkt und die Reaktion wird zu Ende geführt. Ferner ist ein Temperaturfühler 13 vorgesehen, welcher sich in die Reaktionskammer 6 hineinerstreckt. Die Signale des Fühlers werden einer Temperaturüberwachungseinheit 14 zugeführt. Die Ausgangssignale der Temperaturüberwachungseinheit 14 gelangen zu einer Schaltung 18. Ein weiterer Temperaturfühler 15 erstreckt sich in die Heizkammer 4 und dient zur Bestimmung der Temperatur in dieser Heizkammer. Mit diesem Temperaturfühler 15 ist eine ähnliche Temperaturüberwachungseinheit 16 verbunden. Die Schaltung 18 vergleicht die Ausgangssignale der Temperaturüberwachungseinheit 16 mit den Ausgangssignalen der Temperaturüberwachungseinheit 14 und regelt die Temperatur der Heizkammer 4 in Abhängigkeit von diesen Signalen mittels einer geeigneten Temperaturregeleinrichtung 19.

Gemäß Fig. 2 umfaßt die Reaktionskammer 6 einen zylindrischen Außenmantel 20 mit Stirnwänden 22 und 24. Eine Einlaßleitung 26 erstreckt sich durch eine geeignete Öffnung 28 in der Stirnwand 22 und reicht um eine wesentliche Strecke axial in das Innere des Außenmantels 20 und bildet dort eine Einlaßdüse 30. Die Auslaßleitung 12 ist mit einer ähnlichen Öffnung 32 in der Stirnwand 24 des Außenmantels 20 verbunden und dient zur Abführung der rekombinierten Gase. Ein allgemein becherförmiger Mantel 34 befindet sich koaxial innerhalb des Außenmantels 20 und wird dort in geeigneter Weise gehalten, z. B. durch Stifte oder Stangen 36. Diese stützen den becherförmigen Mantel 34, sie stören jedoch die Gasströmung nicht wesentlich. Das geschlossene Ende 38 des becherförmigen Mantels 34 ist der Stirnwand 24 des Außenmantels 20 zugewandt, während das offene Ende 40 des becherförmigen Mantels 34 die Einlaßdüse 30 umgibt. Ferner ist die Einlaßdüse 30 von einer in etwa kegelstumpfförmigen Ummantelung 42 umgeben, welche mit der Einlaßdüse durch geeignete Mittel, wie z. B. Strebren 44 verbunden ist. Diese Strebren 44 halten die Ummantelung 42 ohne daß sie den Gasstrom wesentlich stören. Die Ummantelung 42 ist an beiden Enden 46 und 48 offen und wirkt mit der Einlaßdüse 30 unter Ausbildung eines Venturiabschnitts zusammen und durch diese Bauweise kommt eine verstärkte Zirkulation zustande.

Bei Benützung werden die Verfahrensabgase, welche freien Wasserstoff und Sauerstoff enthalten, durch das Gebläse 8 der Heizkammer 4 zugeführt und dort anfänglich auf eine Temperatur von etwa 650°C erhitzt, welches die Temperaturschwelle für die thermische Rekombinationsreaktion zwischen Wasserstoff und Sauerstoff ist. Sobald diese Reaktion gestartet ist werden die erhitzten Gase über die Einlaßleitung 26 in die Reaktionskammer 6 überführt. Da die Reaktion exotherm ist, erhöht sich die Temperatur der Gase und die Reaktionsgeschwindigkeit nimmt zu. Mit fortschreitender Reaktion wandern die Gase zentral innerhalb des becherförmigen Mantels 34 von der Düse 30 zum Ende des becherförmigen Mantels 34 und streben sodann radial auswärts und sie strömen dann in Gegenstrom zur Zentralströmung entlang der Wandung des becherförmigen Mantels 34 zu dessen offenem Ende 40 hin, wie durch die Pfeile 50 angedeutet. In den Bereichen 52 und 54 werden die umgesetzten heißen Gase mit den relativ kälteren einströmenden Gasen vermischt wodurch die Reaktion einerseits beschleunigt wird und wodurch andererseits die Reaktanten in der Gasmischung verdünnt werden. Die Länge des becherförmigen Mantels 34 ist derart gewählt, daß die thermische Rekombinationsreaktion

im wesentlichen beendet ist, wenn die gemischten Gase bis zum verschlossenen Ende der durch den becherförmigen Mantel 34 gebildeten Kammer und wieder zurück bis zu deren offenem Ende 40 gewandert sind. Die genauen Abmessungen des becherförmigen Mantels 34 hängen von der Strömungsgeschwindigkeit, dem Ausmaß der Durchmischung und der Zirkulation und der jeweils gewählten Regeltemperatur für die reagierten Gase ab.

Wie die Pfeile 52 andeuten, bewirkt der Gegenstrom der Gase eine Durchmischung von teilweise umgesetzten Gasen. Darüber hinaus bildet, wie oben erwähnt, die Ummantelung 42 einen Venturiabschnitt, so daß die aus der Düse 30 austretenden Gase innerhalb der Ummantelung 42 eine Zone niedrigen Drucks bewirken. Hierdurch wird ein Teil der vollständig reagierten Gase gemäß Pfeillinie 54 in den Innenraum der Ummantelung 42 hineingezogen, so daß diese umgesetzten Gase mit den durch Düse 30 neu eingeführten Gasen durchmischt werden. Der Rest der vollständig umgesetzten Gase strömt durch den Kanal 56 zwischen dem Außenmantel 20 und dem becherförmigen Mantel 34 gemäß Pfeillinie 58 und verläßt dann die Reaktionskammer 6 durch die Auslaßleitung 12 gemäß Pfeillinen 60.

Da die thermische Rekombinationsreaktion exotherm ist, steigt die Temperatur der Gase während deren Bewegung durch die durch den becherförmigen Mantel 34 definierte Kammer. Man muß jedoch dabei bedenken, daß die endgültige Temperatur, welche die Gase annehmen können, in Beziehung steht zu deren Temperatur zu jeder Zeit und zur Menge der Reaktanten im Gas zur jeweiligen Zeit. Die Durchmischung der zuvor umgesetzten Gase mit den neu zugeführten Gasen gemäß Pfeillinen 52 und 54 führt zu einer Erhöhung der Temperatur der neu zugeführten Gase und daneben zu einer Verdünnung der Gase, so daß das Verhältnis der Reaktanten zur Gesamtgasmenge verringert wird. Durch die Durchmischung wird die Gastemperatur erhöht und diese Temperaturerhöhung wirkt sich auf die Reaktionsgeschwindigkeit erhöhend aus. Andererseits wird durch die Verdünnung die Endtemperatur oder Höchsttemperatur, welche die Gase durch die Reaktion innerhalb der Reaktionskammer 6 annehmen können, beschränkt. Ferner muß berücksichtigt werden, daß der Temperaturfühler 13, welcher die Temperatur innerhalb der Reaktionskammer 6 mißt, in der Nähe der Öffnung 40 des becherförmigen Mantels 34 angeordnet ist, wo die Reaktion den Endpunkt erreicht und maximale Temperatur vorliegt. Sobald diese maximale Temperatur eine vorbestimmte Nenntemperatur, z. B. etwa 700 bis 760°C übersteigt, so empfängt die Schaltung 18 von der Temperaturüberwachungseinheit 14 ein Signal und spricht auf dieses Signal an und betätigt die Temperaturregeleinrichtung 19 (Regelung der Energiezufuhr) dahingehend, daß die Temperatur der Heizkammer 4 gesenkt wird. Sobald die thermische Rekombinationsreaktion in der Heizkammer 4 gestartet wurde, beginnt die Temperatur zu steigen, so daß der Nennwert der Temperaturüberwachungseinheit 16 überschritten wird. Diese sendet dann ein Signal zur Schaltung 18, wodurch die Regeleinrichtung 19 die der Heizkammer 4 zugeführte Energie verringert. Hierdurch wird die Temperatur der Heizkammer gesenkt, so daß die Reaktionsfront sich stromab in die Reaktionskammer 6 verlagert, wo die Reaktion dann vervollständigt wird. Die Temperatur in der Reaktionskammer steigt sodann bis die Temperatur den Nennwert der Temperaturüberwachungseinrichtung 14 überschreitet, wodurch in oben beschriebe-

ner Weise die Energiezufuhr in die Heizkammer 4 durch die Regeleinrichtung 19 weiter beschnitten wird. Die Durchmischung der zuvor umgesetzten Gase mit den neu eingeführten Gasen niedrigerer Temperatur führt zu einer Temperaturerhöhung der Gasmischung, welche ausreicht, damit die Rekombinationsreaktion innerhalb der Reaktionskammer 6 stabil abläuft. Je nach den Konzentrationen der Reaktanten kann die Temperatur der Verfahrensgase, welche die Heizkammer 4 verlassen, um mehrere 100° gesenkt werden, ohne daß hierdurch die Reaktion unterbrochen würde. Der jeweilige Betrag der Zunahme der Temperatur des Gases nach dem Verlassen der Heizkammer 4 und bis zur Umsetzung in der Reaktionskammer 6 ist der Menge der Reaktanten im Gas direkt proportional.

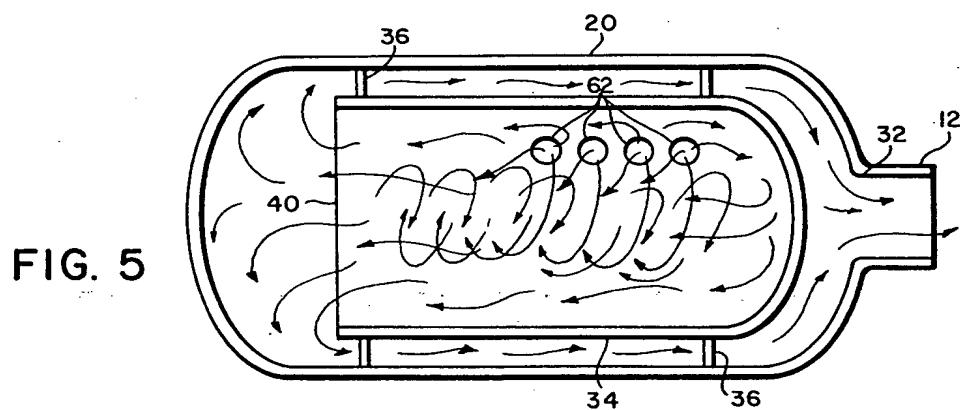
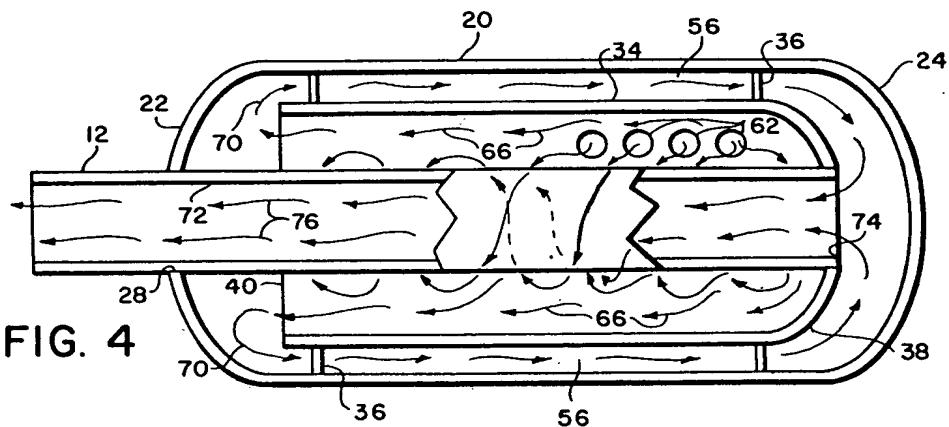
Bei Gasen, welche eine niedrige Wasserstoffkonzentration aufweisen (weniger als etwa 2%) wird die Gastemperatur am Auslaß der Heizkammer auf etwa 700°C eingestellt, so daß ein großer Teil der Reaktion innerhalb der Heizkammer stattfindet. Bei Gasen mit mehr als etwa 2% Wasserstoff wird die Gastemperatur am Auslaß der Heizkammer zunächst auf etwa 650°C eingestellt. Unter diesen Bedingungen findet ein Teil der Reaktion innerhalb der Heizkammer statt und der andere Teil der Reaktion findet innerhalb der Reaktionskammer statt. Die Gastemperatur in der Heizkammer 4 oder in der Reaktionskammer 6 steigt sodann und erreicht einen der beiden Nennwerte, so daß die Temperaturregeleinrichtung 19 die Heizleistung herabsetzt, was zu einer Abkühlung des Gases in der Heizkammer 4 führt. Hierdurch wird die Reaktion der Heizkammer 4 beendet und die Reaktionsfront bewegt sich in die Reaktionskammer 6 und die gesamte Reaktion findet in der Reaktionskammer 6 statt. Die Heizkammer 4 wird durch den Temperaturfühler 15 überwacht, welcher nahe dem Auslaß der Heizkammer gelegen ist. Darüber hinaus hat auch die Messung der Reaktionskammertemperatur durch den Temperaturfühler 13 einen Einfluß auf die Regelung der Temperatur der Heizkammer 4. Das Ansprechen der Regeleinrichtung 19 auf die Ausgangssignale entweder der Temperaturüberwachungseinrichtung 14 oder der Temperaturüberwachungseinrichtung 16 wird durch eine herkömmliche Schaltung 18 (eine sogenannte Auktionatorschaltung) vermittelt. Bei Wasserstoffkonzentrationen von etwa 4% wird die Temperatur der Reaktionskammer auf etwa 700°C eingestellt und die Gastemperatur am Auslaß der Heizkammer wird dabei automatisch auf etwa 400°C gesenkt. Bei noch höheren Konzentrationen an Wasserstoff beträgt die Temperatur der Reaktionskammer etwa 750°C. Die Fig. 3 und 4 zeigen eine weitere Ausführungsform der Reaktionskammer. Bei dieser Ausführungsform sind der Außenmantel 20 und der becherförmige Mantel 34 ähnlich gestaltet wie in Fig. 2. Es sind jedoch eine Vielzahl von Einlässen 62 vorgesehen, welche sich im wesentlichen tangential durch den Außenmantel 20 erstrecken und im Inneren des becherförmigen Mantels 34 ausmünden und zwar in der Nähe der Stirnwandung 38. Falls erwünscht, kann um die Düsenöffnungen 63 der Einlaßleitungen 62 eine Venturiümantelung ähnlich der Ummantelung 42 in Fig. 2 vorgesehen sein. Eine derartige Ummantelung ist durch das Bezugszeichen 65 bezeichnet. Hierdurch wird der Durchmischungsvorgang erleichtert. Die durch die Einlaßleitungen 62 eingeführten Gase strömen auf einem heliksförmigen Weg und im wesentlichen entlang dem Umfang des becherförmigen Mantels 34, wie durch die Pfeile 64 in Fig. 3 angedeutet. Dabei bewegt sich das

Gas allmählich vom verschlossenen Ende 38 des becherförmigen Mantels 34 zum offenen Ende 40 hin, wie durch die Pfeile 66 in Fig. 4 angedeutet. Vorzugsweise sind die Abmessungen des becherförmigen Mantels 34 derart gewählt, daß die thermische Rekombinationsreaktion im wesentlichen beendet ist, sobald die aus den Einlaßrohren 62 ausströmenden Gase einen einzigen Umlauf um den becherförmigen Mantel 34 vollführt haben. Daher durchmischen sich die zuvor umgesetzten Gase bei Rückkehr in die Nähe der Einlaßleitungen 62 mit den neu eingeführten Gase, was durch die Pfeillinien 68 in Fig. 3 angedeutet ist, so daß die Temperatur erhöht wird und die Wasserstoffkonzentration der neu zugeführten Gase verdünnt wird.

Bei Erreichen des offenen Endes des becherförmigen Mantels 34 strömen die Gase radial nach außen (Pfeillinien 70) und durch den Kanal 56 zwischen dem Außenmantel 20 und dem becherförmigen Mantel 34 zum Ende 24 des Außenmantels 20 hin. Wie gezeigt, erstreckt sich die Auslaßleitung 12 durch eine Öffnung 28 in der Stirnwandung 22 des Außenmantels 20 und steht andererseits mit einem hohlen Zentralkern 72 in Verbindung, welcher sich axial durch die gesamte Länge des becherförmigen Mantels 34 erstreckt und mit dem Raum zwischen der Endwandung 38 des becherförmigen Mantels 34 und der Endwandung 24 des Außenmantels 20 über eine Öffnung 74 in Verbindung steht. Nachdem somit die Gase den Kanal 56 durchströmt haben, bewegen sie sich radial einwärts und sodann durch den zentralen hohlen Kern 72 zum Auslaß 12 hin, was durch die Pfeillinien 76 angedeutet ist.

Bei einer weiteren alternativen Ausführungsform kann die Öffnung 28 der Stirnwandung 22 des Außenmantels 20 geschlossen sein (Fig. 5), und es kann auch die Öffnung 74 in der Stirnwandung 38 des becherförmigen Mantels 34 verschlossen sein und der hohle Kern 72 kann weggelassen sein. In diesem Fall ist die Auslaßleitung 12 genauso vorgesehen wie bei der Ausführungsform gemäß Fig. 2. Auch diese Ausführungsform arbeitet im wesentlichen genauso wie diejenige gemäß Fig. 3. Die Gase werden jedoch nach dem Durchströmen des Kanals 56 durch die Stirnwandung 24 des Außenmantels 20 in gleicher Weise wie bei der Ausführungsform gemäß Fig. 2 entlassen.

Hierzu 2 Blatt Zeichnungen



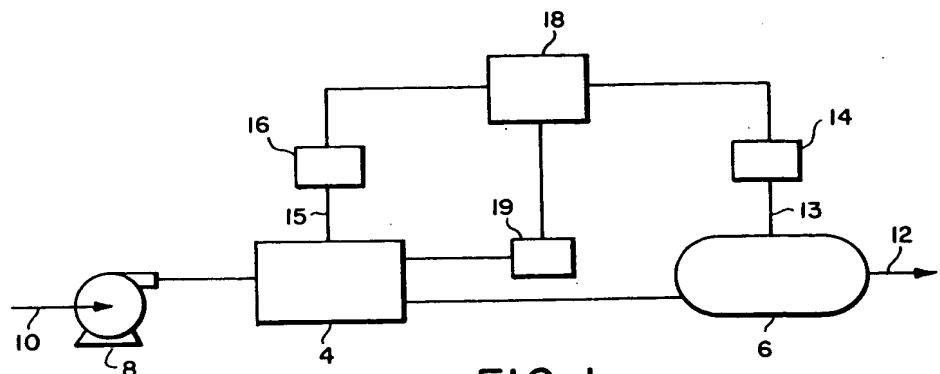


FIG. I

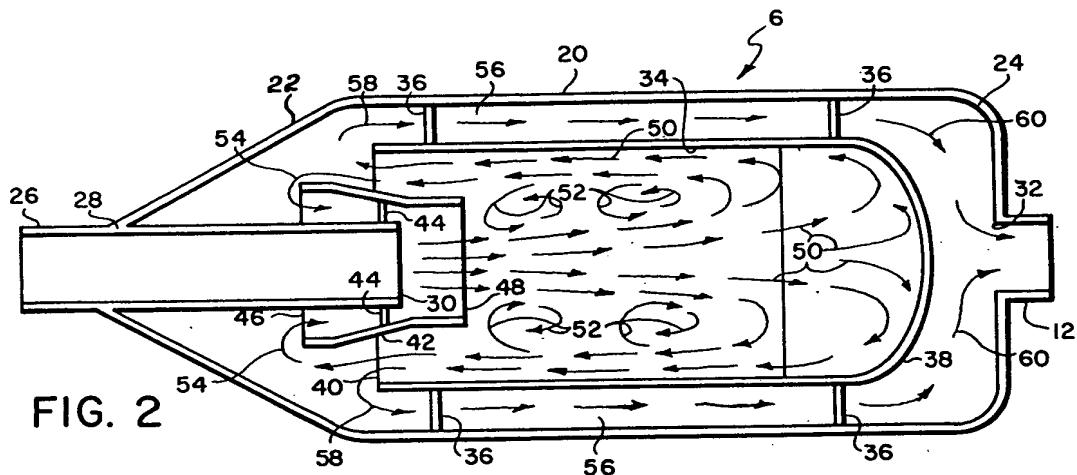


FIG. 2

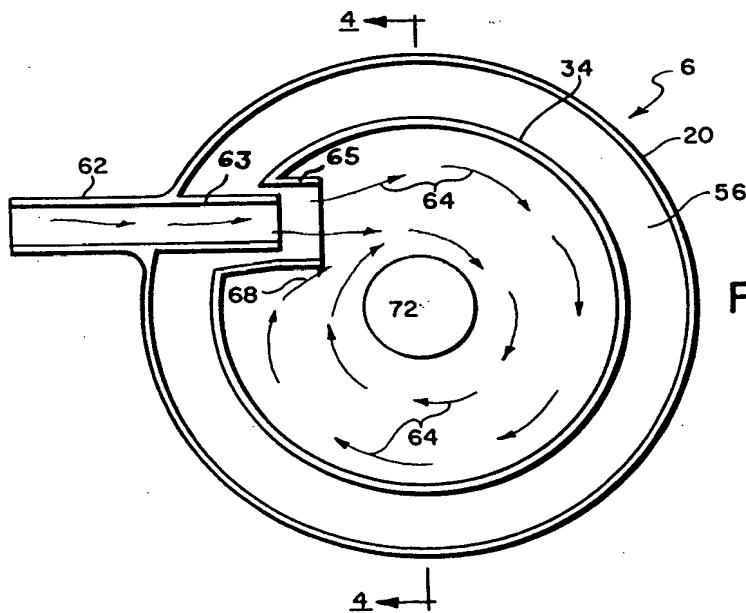


FIG. 3